科研費

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 2 年 7 月 1 0 日現在

機関番号: 12604

研究種目: 基盤研究(C)(一般)

研究期間: 2016~2019

課題番号: 16K01177

研究課題名(和文)肥前色絵磁器に用いられた上絵具の化学的特性と材質変遷に関する研究

研究課題名(英文)Studies on the Chemical Characterization and Material Transition of overglaze pigments used for Hizen Iroe Porcelain

研究代表者

新免 歳靖(SHINMEN, Toshiyasu)

東京学芸大学・教育学部・講師

研究者番号:40759156

交付決定額(研究期間全体):(直接経費) 3,500,000円

研究成果の概要(和文):近世有田産の肥前色絵磁器に焦点をあて、色絵具の製作技術解明や近世期の材質的特徴と変遷の把握などを目的として、遺跡出土資料の材質分析、現在の色絵磁器の原料・製作技術調査、色絵具の復元実験などを実施した。また色絵具の製作技術の比較・参考研究として、近世の磁器製作遺跡から出土した磁器原料や近代七宝釉薬資料の調査を行った。遺跡出土色絵磁器の色絵具の材質分析を行い、上絵具の基本的な材質や着色元素の種類が明らかとなった。また、色絵具には磁器の生産地や様式などによる違いが認められる結果となった。

研究成果の学術的意義や社会的意義 肥前色絵磁器の上絵具については、色絵の中心となる赤絵具の研究が主体を占め、特に赤色の発色や粉体技術と の関係で工学分野での研究が行われてきた。一方で、工学的研究はその性格上、原理や機構の解明が目的となる ため、窯業考古学や美術工芸史分野で必須となる歴史的・編年的な研究は盛り込まれず、絵具の製作技術の伝播 や変遷といった研究は行われてこなかった。そのため、本研究は、近世期の色絵磁器の製作や発展についての基 礎となる情報を提供し、考古学や工芸史分野にも資するものと考える。

研究成果の概要(英文): Focusing on Hizen Iroe porcelain produced in Arita in the early-modern times, we conducted scientific analysis of excavated artifacts, investigation of raw materials and production techniques of current Iroe porcelain, and restoration experiments of colored pigments in order to clarify the production techniques of Iroe porcelain and to comprehend the material characteristics and transition in the early-modern times. In addition, as a comparative and reference studies of the manufacturing techniques of the colored pigments, we investigated porcelain raw materials unearthed from porcelain manufacturing sites and materials of modern shippo glaze. By analyzing the materials of the colored pigments of Iroe porcelain from archaeological site, the basic materials and types of colored elements of pigments were clarified. In the colored pigments, it was found that there were differences according to the production area and style of porcelain.

研究分野:文化財科学、考古科学

キーワード: 肥前有田 色絵磁器 色絵具 磁器原料 七宝釉薬 蛍光X線分析 X線回折分析

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。

様 式 C-19、F-19-1、Z-19(共通)

1.研究開始当初の背景

日本における磁器の生産は、1610 年代に朝鮮人陶工の手により肥前有田で始まり、窯場の統制や再編などを経ながら日本有数の陶磁器産地に成長し、19 世紀初頭まで有田とその周辺地域でほぼ独占的に行われた。今日、この一帯で作られた磁器を「肥前磁器」と総称している。肥前磁器の発展を考える上で重要な技術に「色絵磁器」の製作技術がある。色絵磁器の製法は 1640年代に中国から有田に伝わった磁器製作における革新技術の一つである。色絵磁器とは、焼成した磁器表面に、赤・黄・緑などの絵具(色絵具)で文様を描き(上絵付け)低火度(約800)で焼き付けた極彩色の焼き物である。現在の研究成果では、1640~1660年代にかけて製作された初期の色絵磁器が「古九谷」であり、1670~1680年代に徳川将軍家献上用の「色鍋島」や海外のヨーロッパ貴族向けの「柿右衛門」といった最高級磁器と、いわゆる「金欄手」や「赤絵」などの高級磁器へ分化していく。現在でも有田では色絵磁器が生産されており、特に今右衛門窯や柿右衛門窯では伝統的な手法で色絵磁器の制作が行われている。

近年、肥前有田の赤色絵具については、着色材の「ベンガラ」(-Fe₂O₃)がナノレベルの極小粒子として存在し、微小な粒子になるほど赤の発色が鮮やかになることが明らかとなり、ベンガラの産業利用のうえでも注目されている。しかし、赤色絵具を含め上絵具の基質となるガラス材質に関する調査事例は少なく、近世の肥前色絵磁器に用いられた上絵具の体系的な化学分析はほとんど行われていない。考古学・工芸史的には、上絵具の赤色や緑色、黄色などの色調が製作時期によって変化することが捉えられている。しかし、この色調変化がどういった材質や着色材の変化と対応しているのかは不明である。また、色絵磁器技術の起源である中国景徳鎮窯との技術的な類似性や有田内での窯や生産地域間での技術の伝播や変遷も明らかとなっていない。したがって、日本の色絵磁器に関する研究を行う上で、色絵磁器の上絵具材質の化学的・物理的な特性を把握することは、その起源や展開、技術の伝播などを明らかにする上で不可欠であり、それにより色絵技術に関する研究も進展するものと考えられる。

2.研究の目的

有田における色絵磁器の製作技術は基本的に現在にも引き継がれており、現在の技術から近世期の技術をある程度は推測することは可能である。ただし、上絵具に限定した場合、近世における原料の種類、原料の入手方法や製作方法、上絵具の調合や製作方法、焼成施設の構造といった技術の実態は明らかとなっていない。これらの課題については資料的な制約もあり、現時点でその全貌を明らかにすることは困難である。しかし、上絵具の調合や製作方法については、上絵具の材質から推測することが可能である。近世期の有田産肥前色絵磁器に焦点をあて、生産年代や生産地が明確な遺跡出土資料を用い、主に誕生期とその後続期(1650~80年代)における上絵具材質の化学的・物理的な特性を把握することを目的として、色絵具の材質分析を行う。また、出土資料は基本的に埋没中の劣化や2次的な焼成を受けて変質しているため、分析結果の解析を行い、変質した資料の本来の色調などの復元を目指した。あわせて文献調査、色絵磁器工房などへの聞き取り調査、色絵具の製造実験などを実施し、色絵磁器の製作技術に総合的な検討を加える。

3.研究の方法

(1)色絵磁器に用いられた色絵具の科学分析

肥前色絵磁器に用いられた色絵具の科学的調査では、東京大学構内の遺跡医学部附属病院入院棟 A 地点から出土した肥前有田および中国景徳鎮の色絵磁器資料を用いた。生産年代については、17世紀中頃~後半までの資料を対象とし、古九谷や柿右衛門などがある。分析には蛍光 X 線分析法 (XRF)を用い、非破壊分析を行ったが、資料は埋蔵中の汚染や劣化の影響を受けているため、状態の良い箇所を選択し、劣化等の影響を受けないデータの取得を目指した。あわせて、劣化した箇所も分析し、両者の分析データを比較することで、劣化した箇所の色絵具が本来どういった色調の色絵具だったか復元を行った。東大資料の比較として、文京区駒込鰻縄手御先手組屋敷跡出土色絵磁器の分析を行った。これらの調査と下記する聞き取り調査や磁器原料の調査では、東京芸術大学の水本和美氏にご協力いただいた。

(2) 色絵磁器の製作技術の研究

科学分析と同時に色絵磁器を製作している工房、色絵磁器を制作している伝統工芸士、色絵具を作製している職人の方々への聞き取り調査や原料調査、近世期の色絵具の復元実験なども行った。

(3)近世磁器原料の研究

色絵磁器の製作技術を研究するにあたり、その素地となる磁器自体の製作技術、特に原料の調整技術についても調査・研究を行った。磁器素地原料の製作と色絵具の製作では、原料の粉砕や研磨、水簸という工程が共通する。しかし、これらの粉体技術についてはこれまで注目されておらず、不明な部分が多い。また、色絵具では、焼成によって粒度などの情報が消失し、一部の赤色顔料を除き、その技術の痕跡を捉えることが難しい。そこで、近世の有田における磁器製作技術の比較研究として有田町の中樽一丁目遺跡・泉山一丁目遺跡の窯屋跡から出土した磁器原料の材質分析を行い、近世期の粉体技術について調査・研究を行った。分析資料は、有田町教育委

員会の村上伸之氏からご提供いただいた。資料は磁器素地の製作過程で生じたと考えられる原料であり、XRF、XRD、ICP-OES などを行い、化学組成や含有鉱物の種類を求め、どういった製作工程によって生じたものかを推測した。

(4)近代七宝の研究

上絵具の製作技術調査の一環として、明治期の七宝釉薬に関する調査を行った。本来ならば近世期の七宝釉薬を扱うべきだが、管見の限り残存する資料がほとんど存在しないため、本研究では近代七宝の釉薬製作技術の調査を行った。筆者らによる先行調査・研究でも近代七宝釉薬と色絵磁器の色絵具には材質的な類似性が認められていたが、これは近世期の窯業(陶磁器、ガラス、七宝など)技術の基盤の上に、近代七宝業が成り立っているためである。そのような一見、無関係な異業種の技術を比較し、近世から近代にかけての窯業に通底する基盤技術を検討する。そのため、色絵具と七宝釉薬の技術的な類似性を文献調査や化学分析から解明することを目的とした。

4. 研究成果

(1)色絵磁器に用いられた色絵具の科学分析

東京大学構内の遺跡医学部附属病院入院棟 A 地点から出土した、17 世紀中頃から後半の肥前有田および中国景徳鎮の色絵磁器の色絵具についてエネルギー分散型蛍光 X 線分析(ED-XRF)による材質分析を行った。ED-XRFでは、非破壊で赤色・黄色・緑色・紫色・青色・黒色・茶色などの色絵具を分析した。従来、伝統工芸や窯業化学の分野では、上絵具層は鉛ガラス質とされてきたが、筆者らは江戸城汐見多聞櫓跡の明暦の大火(1657)の廃棄物層から出土した色絵磁器の化学分析を行い、赤色絵具には初期(16 世紀中頃)の段階では鉛含有量が極端に低い絵具であることを明らかにした。また、それまでは、日中色絵磁器の色絵具の比較は行われておらず、技術的な関連性の実態は不明であった。同遺跡の日中の色絵具の比較を行い、ほぼ同時期の中国景徳鎮窯の色絵磁器においても赤絵具では鉛をほぼ含まないことが判明している。

分析の結果、赤色絵具については、鉛の含有量が低く(図1)、肥前磁器と景徳鎮磁器の化学組成に類似性が認められた。この点は両者の技術的な関連性を示している可能性が高く、先行研究と整合性のある結果となった。本結果から有田の鉛含有量が低い赤絵具の製法は、中国景徳鎮から移入された技術であると推測した。そのため、赤絵具の製法は、中国から導入された当時の「鉛含有量が低い製法」から、どこかの段階で「一定量の鉛を加える製法」に変化したと考えられる。有田内の窯間でみると赤絵具の化学組成は類似しており、初期の製作技術において共通性が認められる結果となった。また、線描きと濃み(面塗)の部分では化学組成に差異が認められたため、初期の段階から用途によって赤絵具の製作と使用の使い分けがなされていたことが明らかとなった。一方、他の色絵具については、有田と景徳鎮の磁器を比較すると基本的な材質は類似していたが、景徳鎮磁器の鉛濃度が高い傾向にあった。これは、有田の技術が景徳鎮の技術を基盤としつつも、独自の改良が施されていたためと考えられる。この点は赤絵具とは異なるが、これは赤絵具と他の鉛ガラス系色絵具間での技術系統や難易度の違いを示している可能性がある。赤絵具が中国からの技術を忠実に再現しなければ製作できなかったのに対し、鉛系絵具はある程度の技術的な改良によって、自分たちの嗜好にあった絵具を作製することができたと推測される。今後は、赤系統と他の鉛ガラス系統と両系統の技術を分けて、その起源や展開を検討する必要がある。

劣化箇所の分析では、目視によって緑色、赤色、黒色と観察された色絵具の一部が、分析データの観察からそれぞれ、黄色、緑色、青または紫色であると推測された。絵具の変色原因は火災による2次的な焼成の結果であるが、分析データから火災による劣化資料の色調を復元できることが明らかになった。

色絵磁器の製作技術を検討する上で、資料自体の生産地に関する情報が不可欠である。そのため、文京区駒込鰻縄手御先手組屋敷跡出土の色絵磁器資料を中心に、ICP-0ES を用いた胎土分析・釉薬分析による産地推定を実施した。分析の結果、肥前磁器や中国景徳鎮磁器などの考古学的な生産地分類と磁器胎土と釉薬の化学組成による分類が整合性のある結果となった。

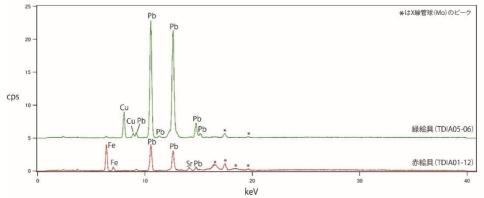


図 1 赤絵具と緑絵具の XRF スペクトル

(2)色絵磁器の製作技術の研究

考古資料の分析結果から上絵付け技術の解析を行うため、現在、有田町で陶磁器用の上絵具を作成する職人の方や伊万里市で色絵磁器を制作している伝統工芸師の方に上絵具や色絵磁器の製作技術に関する聞き取り調査を行った。聞き取り調査は、現在、有田町で色鍋島焼を制作している今右衛門窯を訪問し、第14代今泉今右衛門氏からお話を伺うとともに工房の見学を行った。また、色絵磁器の製作について伝統工芸士の山崎伸悟氏、色絵具について辻絵具店の辻昇楽氏からお話をうかがった。これらの調査から、有田では時代にあわせて原材料や道具には変化が見られるが、近世以来の色絵磁器の製作技術は保持されていることが明らかとなった。

色絵原料の調査では、江戸時代の原料は残存していないため、有田町で伝統的に用いられてきた原料を対象とし、今右衛門古陶磁美術館から展示用の原料資料などをご提供いただき、機器分析(XRF、X線回折分析(XRD)等)によって化学的特性の把握することができた(図2)。

近世・近代における色絵具の調合に関する文献調査を行うとともに、文献の調合に基づいた色 絵具の製造実験を行った。色絵具の復元実験では、『鍋島藩窯の研究』に記載された幕末の調合 データをもとに、唐石(鉛ガラスフリット)の製作と赤色具と緑色具の焼成実験を行った。唐石 の製造では、比較的容易に白色化したフリットを製作することができたが、赤絵具では唐石の粒 度が大きく、色むらが発生した。唐石についても原料の粒度管理の重要性が観取される結果となった。

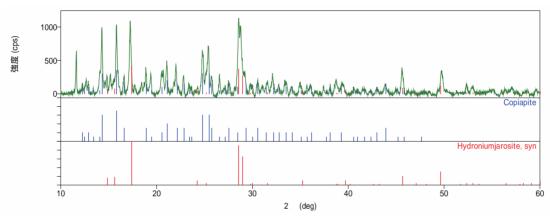


図2 『緑礬(ローハ)』の XRD チャート

(3)近世磁器原料の研究

有田町の中樽一丁目遺跡・泉山一丁目遺跡から出土した磁器原料の材質分析を行った。ICP-OESにより、原料や磁器胎土の化学組成を求めた。分析の結果、原料精製過程に対応して、磁器原料の化学組成が変化するとともに、釉薬などに使用されたと予想される珪酸分の高い原料ができることが明らかとなった(図3)。あわせてクロスセクション試料の偏光顕微鏡観察、鉱物分離試料の定方位 XRD分析を行い、含有鉱物の種類をより詳細に検討し、化学組成による分類と整合性のある結果となった。

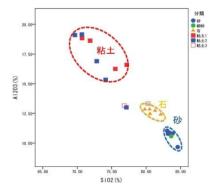


図3 磁器原料の元素分布図

(4)近代七宝釉薬の研究

近代七宝釉薬の研究では、明治期の絵具について報告した高松豊吉著『On Japanese Pigments』の翻訳と記載内容の調査(翻訳は東京学芸大学文化財科学研究室の大学院生と実施)大正期の勲章資料に用いられた釉薬の調査、愛知県あま市七宝焼アートヴィレッジが所蔵する塚本貝助家資料の調査などを行った。これらの調査では、あま市七宝焼アートヴィレッジの小林弘昌氏、京都造形芸術大学の武藤夕佳里氏、東京学芸大学大学院生の高橋佳久氏などの協力を得た。

日本の近世から近代磁器の色絵具と同時期の七宝焼釉薬には技術的・材質的な類似性がきわめて高い。文献等に記載された原材料の比較を通して、年代や産地の違いはあるものの、磁器の上絵具と七宝釉薬の製作には共通する要素が多く認められた。近世から近代への技術の継承や地域間での技術の伝播、異業種間での交流、近代科学技術の導入などを考察するうえでも、非常に重要な研究であり、今後更なる調査が必要である。

5 . 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔 学 全 発 表 〕	計7件	(うち招待護演	0件/うち国際学会	0件)
しチムガル		し ノ り 10 1寸 碑/宍	リオノフツは不子女	UIT.

1.発表者名

新免歳靖、村上伸之、水本和美、二宮修治

2 . 発表標題

有田町中樽一丁目遺跡から出土した磁器原料の化学分析

3 . 学会等名

日本文化財科学会第35回大会

4.発表年

2018年

1.発表者名

新免歳靖、武藤夕佳里、高橋佳久、石子 希、伊藤鈴音、矢本夏子、小林弘昌、二宮修治

2 . 発表標題

明治期の七宝製作技法 塚本貝助家文書に見る技法と勲章釉薬の検討

3 . 学会等名

文化財保存修復学会第40回大会

4.発表年

2018年

1.発表者名

武藤夕佳里、新免歳靖、高橋佳久、長沼暦

- 2 . 発表標題
 - "ON JAPANESE PIGUMENTS"(高松豊吉1878年)にみる並河七宝の釉薬
- 3 . 学会等名

日本産業技術史学会第34回年会

4.発表年

2018年

1.発表者名

新免歳靖、呉暁瓊、水本和美、二宮修治

2 . 発表標題

東京都立向丘高等学校遺跡出土磁器の自然科学的研究 - 17世紀の肥前磁器と中国磁器の比較を中心に -

3 . 学会等名

日本文化財科学会第34回大会

4.発表年

2017年

1. 発表者名 新免歳靖
2.発表標題 "器"から歴史を読む・肥前磁器の科学分析を通して・
3.学会等名 日本技術士会CPD中央講座
4 . 発表年 2019年
1.発表者名 新免歳靖、村上伸之、水本和美、二宮修治
2.発表標題 有田町中樽一丁目遺跡・泉山一丁目遺跡から出土した磁器原料からみる磁器製作工程
3.学会等名 東洋陶磁学会2019年度第4回研究会
4 . 発表年 2019年
1.発表者名 新免歳靖
2.発表標題 色絵磁器の科学分析
3.学会等名 東京大学埋蔵文化財調査室調査研究プロジェクト5 「加賀藩邸出土陶磁器と科学分析」
4 . 発表年 2019年
〔図書〕 計0件
〔産業財産権〕
〔その他〕

6 研究組織

0					
	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考		
	小林 弘昌	あま市七宝焼アートヴィレッジ			
研究協力者	(Kobayashi Hiromasa)				

6.研究組織(つづき)

6	. 研究組織 (つづき)				
	氏名 (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考		
研究協力者	村上 伸之 (Murakami Nobuyuki)	有田町教育委員会			
研究協力者	武藤 夕佳里 (Muto Yukari)	京都造形芸術大学			
研究協力者	二宮 修治 (Ninomiya Shuji)	東京学芸大学			
研究	高橋 佳久 (Takahashi Yoshihisa)	東京学芸大学大学院修士課程			
	水本 和美 (Mizumoto Kazumi)	東京芸術大学			
研究協力者	堀内 秀樹 (Horiuchi Hideki)	東京大学			